

23126

(12) NACH DEM VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES
PATENTWESENS (PCT) VERÖFFENTLICHTE INTERNATIONALE ANMELDUNG

(19) Weltorganisation für geistiges Eigentum
Internationales Büro



(43) Internationales Veröffentlichungsdatum
29. Januar 2004 (29.01.2004)

PCT

(10) Internationale Veröffentlichungsnummer
WO 2004/009519 A1

(51) Internationale Patentklassifikation⁷: C07C 4/06,
11/00, 11/02, 1/06

(74) Gemeinsamer Vertreter: LURGI AG; Lurgiallee 5,
60295 Frankfurt am Main (DE).

(21) Internationales Aktenzeichen: PCT/EP2003/005903

(22) Internationales Anmeldedatum:
5. Juni 2003 (05.06.2003)

(25) Einreichungssprache: Deutsch

(26) Veröffentlichungssprache: Deutsch

(81) Bestimmungsstaaten (*national*): AE, AG, AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BY, BZ, CA, CH, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DZ, EC, EE, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX, MZ, NI, NO, NZ, OM, PH, PL, PT, RO, RU, SC, SD, SE, SG, SK, SL, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, YU, ZA, ZM, ZW.

(30) Angaben zur Priorität:
102 33 069.7 19. Juli 2002 (19.07.2002) DE

(84) Bestimmungsstaaten (*regional*): ARIPO-Patent (GH, GM, KE, LS, MW, MZ, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), eurasisches Patent (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), europäisches Patent (AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HU, IE, IT, LU, MC, NL, PT, RO, SE, SI, SK, TR), OAPI-Patent (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

(71) Anmelder (für alle Bestimmungsstaaten mit Ausnahme von US): LURGI AG [DE/DE]; Lurgiallee 5, 60295 Frankfurt am Main (DE).

(72) Erfinder; und

(75) Erfinder/Anmelder (nur für US): BACH, Hermann [DE/DE]; Lahnstr. 28, 56412 Heiligenroth (DE). KÖMPEL, Harald [DE/DE]; Nachtigallenstr. 44, 63263 Neu-Isenburg (DE). AHLERS, Bernd [DE/DE]; Laurentiusstr. 11, 60388 Frankfurt am Main (DE). TRABOLD, Peter [DE/DE]; Karlsbader Str. 27, 64295 Darmstadt (DE). HÖPER, Frank [DE/DE]; Gutenbergstr. 5, 61184 Karben (DE).

Veröffentlicht:

— mit internationalem Recherchenbericht

Zur Erklärung der Zweibuchstaben-Codes und der anderen Abkürzungen wird auf die Erklärungen ("Guidance Notes on Codes and Abbreviations") am Anfang jeder regulären Ausgabe der PCT-Gazette verwiesen.

(54) Title: METHOD FOR PRODUCING PROPYLENE FROM A FLOW CONTAINING C₄ TO C₈ OLEFINS

(54) Bezeichnung: VERFAHREN ZUR HERSTELLUNG VON PROPYLEN AUS EINEM C₄ BIS C₈ OLEFINE ENTHALTENDEN EINSATZSTROM

(57) Abstract: The invention relates to a method for producing propylene, whereby a flow containing C₄ to C₆ olefins is evaporated, overheated, and mixed with water vapour, the olefin/steam mixture is reacted on a zeolite catalyst, and the reaction mixture thus formed is cooled and then partially condensed. In order to increase the yield of propylene, the gas phase resulting from the partial condensation and containing ethylene, propylene, C₄ to C₈ olefins and other hydrocarbons, is condensed, and the gas and liquid phase resulting from said condensation step and containing propylene, ethylene and other light hydrocarbons, is separated into a gas phase containing propylene, ethylene and other light hydrocarbons, and a liquid phase containing C₄₊ olefins, and the liquid phase is separated into a fraction containing C₄ to C₆ olefins and a fraction containing C₇₊ olefins.

(57) Zusammenfassung: Bei einem Verfahren zur Herstellung von Propylen wird ein C₄ bis C₆ Olefine enthaltender Einsatzstrom verdampft, überhitzt, mit heissem Wasserdampf gemischt, das Olefine-Dampf-Gemisch an einem Zeolithkatalysator umgesetzt, das dabei gebildete Reaktionsgemisch abgekühlt und dann teilkondensiert. Um die Ausbeute von Propylen zu steigern, wird die bei der Teilkondensation anfallende Ethylen, Propylen, C₄ bis C₈ Olefine und weitere Kohlenwasserstoffe enthaltende Gasphase verdichtet, die aus der Verdichterstufe austretende Propylen, Ethylen und andere leichte Kohlenwasserstoffe enthaltende Gas- und Flüssigkeitsphase in eine Propylen, Ethylen und andere leichte Kohlenwasserstoffe enthaltende Gasphase und eine C₄₊ Olefine enthaltende Flüssigkeitsphase und die Flüssigkeitsphase in eine C₄ bis C₆ Olefine enthaltende Fraktion und eine C₇₊ Olefine enthaltende Fraktion getrennt.

WO 2004/009519 A1

BEST AVAILABLE COPY

Verfahren zur Herstellung von Propylen aus einem C₄ bis C₈ Olefine enthaltenden
Einsatzstrom

Die Erfindung betrifft ein Verfahren zur Herstellung von Propylen aus einem C₄ bis C₈ Olefine enthaltenden flüssigen Einsatzstrom, der bei 25 bis 200°C verdampft und auf 350 bis 400°C überhitzt wird, der gebildete die Olefine enthaltende Dampf mit heißem Wasserdampf gemischt wird, das Olefine-Dampf-Gemisch bei Eintrittstemperaturen von 450 bis 550°C und Drücken von 0.5 bis 3.0 bar (abs) an einem formselektiven Zeolith-Festbettkatalysator vom Pentasiltyp umgesetzt wird, das dabei gebildete Reaktionsgemisch auf 100 bis 200°C abgekühlt wird und durch eine anschließende weitere Abkühlung auf 40 bis <100°C eine Teilkondensation unter Bildung einer im wesentlichen Ethylen, Propylen, C₄ bis C₈ Olefine und weitere Kohlenwasserstoffe enthaltenden Gasphase und einer im wesentlichen aus Wasser bestehenden in den Einsatzstrom zurückgeführten Flüssigkeitsphase durchgeführt wird.

Um die weltweit steigende Nachfrage nach Propylen, das zu annähernd 98% als Nebenprodukt beim thermischen Cracken (Steamcracking) und beim katalytischen Cracken im Fließbett (Fluid Catalytic Cracking, FCC) von Erdölfraktionen anfällt, befriedigen zu können, ist die Fachwelt bestrebt, Propylene auf sekundäre Weise zu erzeugen. Zu diesem Zweck werden gemäß Z.:HYDROCARBON ENGINEERING May 1999, S.66/67 C₄+ Olefine, wie Butylene, Pentene, Hexene etc. mittels eines formselektiven Zeolith-Katalysators vom Pentasil-Typ in „CH₂“-Glieder zerlegt, die sich dann wieder zu Propylen, Ethylen und

Butylen in einer Quasi-Gleichgewichtsverteilung rekombinieren, wobei die Umsatzrate ca. 83 Gew.-% (42 Gew. % Propylen, 31 Gew. % Butylen und 10 Gew. % Ethylen), bezogen auf Olefine im Einsatzstrom, beträgt. Im Falle einer Rückführung von Butylen in den Prozeßkreislauf ergibt sich sogar eine Ausbeute von 60 Gew. % Propylen und 15 Gew. % Ethylen. Zur Herstellung von Propylen wird der C₄₊ Kohlenwasserstoffe enthaltende mit rückgeführtem Butylen gemischte Einsatzstrom nach Durchströmen eines Sättigers, nach Zugabe von Kreislaufwasserdampf in einem Wärmetauscher bei Temperaturen von 20 bis 100° C verdampft, anschließend in einem Wärmetauscher und in einem Ofen auf eine Temperatur von 100 bis 500°C überhitzt und dann einem mit einem formselektiven Zeolith-Festbettkatalysator vom ZSM-5 Typ gefüllten Reaktionsbehälter, vorzugsweise vom Claus-Typ, zugeführt. Der aus dem Reaktionsbehälter austretende Gasstrom wird in einem Wärmetauscher auf eine Temperatur von 100 bis 200°C abgekühlt, auf einen Druck von 2 bis 6 bar (abs) verdichtet, danach der Kondensationsseite eines Verdampfer/Kondensators aufgegeben und die in der Gasphase verbliebenen Kohlenwasserstoffe zu einem Benzin/Olefin-Splitter geleitet, während das vor allem aus Wasser bestehende Kondensat nach einer Druckabsenkung im Verdampfer/Kondensator verdampft und dem Sättiger als Kreislaufwasserdampf zugeführt wird. Die Gasphase wird in dem Splitter in eine C₃-Kohlenwasserstoffe enthaltende Fraktion und Benzin getrennt.

Es ist die Aufgabe vorliegender Erfindung, die Ausbeute an Propylen mittels des eingangs beschriebenen Verfahrens ohne Steigerung des technischen Aufwands zu erhöhen.

Gelöst ist diese Aufgabe dadurch, daß die bei der mittels einer Quenchstufe durchgeführten Teilkondensation gebildete Ethylen, Propylen, C₄ bis C₈ Olefine und weitere Kohlenwasserstoffe enthaltende Gasphase auf einen Druck von 20 bis 30 bar (abs) verdichtet wird, die aus der Verdichterstufe austretende Gas- und Flüssigkeitsphase in eine im wesentlichen Propylen, Ethylen und andere leichte Kohlenwasserstoffe enthaltende Gasphase und in eine C₄₊ Olefine enthaltende Flüssigkeitsphase getrennt werden und die Flüssigkeitsphase in eine C₄ bis C₆ Olefine enthaltende Fraktion und eine C₇₊ Olefine enthaltende Fraktion getrennt wird.

Eine vorzugsweise Ausgestaltung des Verfahrens ist darin zu sehen, daß der in der Quenchstufe als Kondensat anfallende Wasserstrom wieder verdampft wird, dann auf eine Temperatur von 600 bis 800°C aufgeheizt und in den dampfförmigen Kohlenwasserstoffe

enthaltenden Einsatzstrom zurückgeführt wird. Durch diese Maßnahme wird der Einsatzstrom auf die für die Reaktionsstufe erforderliche Eingangstemperatur von 450 bis 550°C erhitzt, so daß auf das Aufheizen des Kohlenwasserstoffe enthaltenden Einsatzstroms mittels eines besonderen Ofens verzichtet werden kann.

Nach einem weiteren erfindungsgemäßen Merkmal wird der überwiegende Teil der erzeugten C₄ bis C₆ Olefine in den dampfförmigen Kohlenwasserstoffe enthaltenden Einsatzstrom zurückgeführt, um die Propylenausbeute weiter zu steigern.

Es ist weiterhin von Vorteil, das in der Verdichterstufe anfallende Wasser zu verdampfen, dann den Dampf auf eine Temperatur von 600 bis 800°C aufzuheizen und dem dampfförmigen Kohlenwasserstoffe enthaltenden Einsatzstrom wieder zuzusetzen.

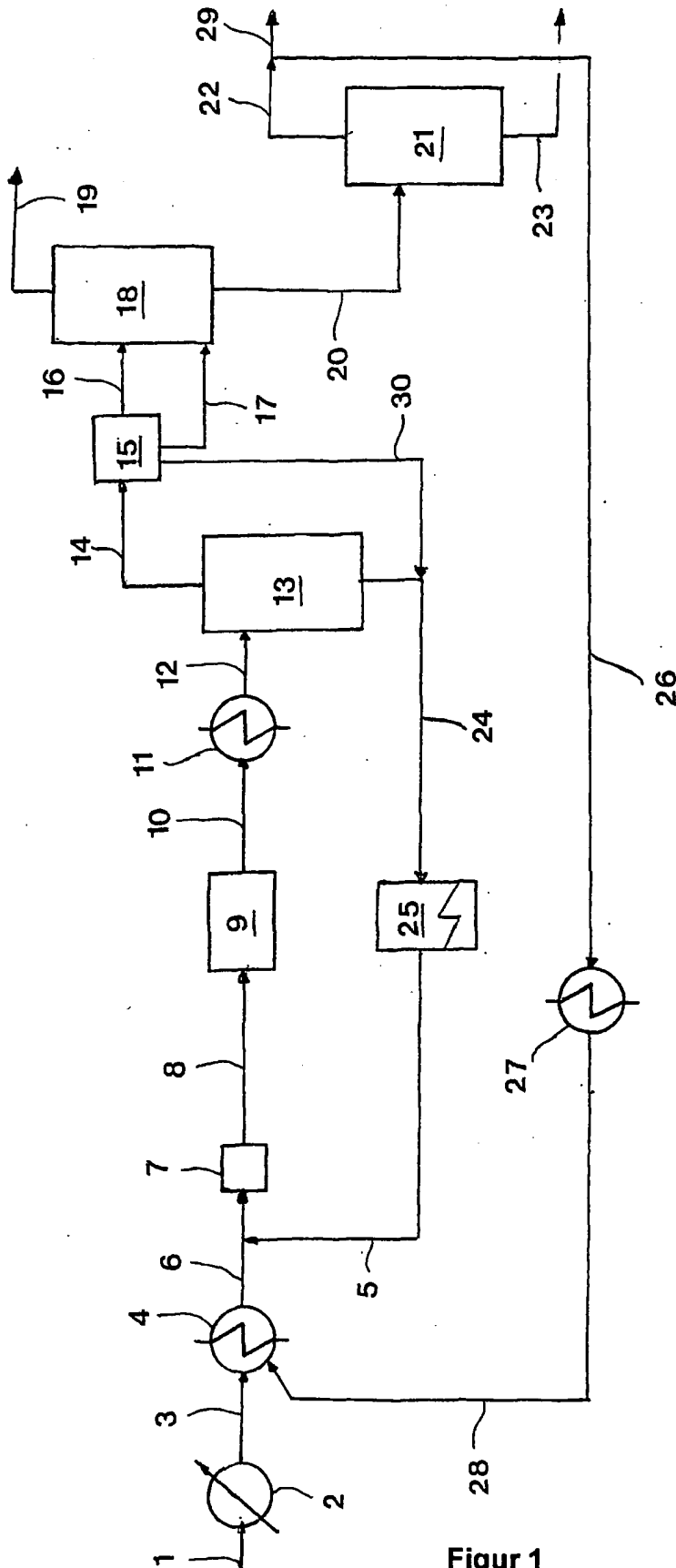
Die Erfindung ist in der Zeichnung durch ein Verfahrensflißbild beispielhaft dargestellt und wird nachstehend näher erläutert.

Über Leitung (1) wird der C₄ bis C₈ Olefine enthaltende Einsatzstrom einem Verdampfer (2) aufgegeben, in diesem auf eine Temperatur von 100°C erwärmt und bei einem Druck von 6.5 bar (abs) verdampft. Der Einsatzstrom strömt über Leitung (3) in einen Überhitzer (4) und wird in diesem auf eine Temperatur von 350°C überhitzt. Zur weiteren Überhitzung des Einsatzstroms auf eine Temperatur von 500°C wird dieser mit über Leitung (5) zugeführtem und in Leitung (6) eingespeisten 700°C heißen Wasserdampf mittels der Mischvorrichtung (7) gemischt. Über Leitung (8) wird der eine Temperatur von 500° C besitzende Gasstrom in den Reaktor (9) geleitet. In einer endothermen adiabaten Reaktion an einem Zeolith - Festbettkatalysator wird der überwiegende Teil der C₄ bis C₈ Olefine zu C₃ bis C₆ Olefinen an mit Propylen als Hauptkomponente umgesetzt. Das eine Reaktionstemperatur von 460°C aufweisende über Leitung (10) abgeführte Reaktionsgemisch wird in dem Wärmetauscher (11) auf eine Temperatur von 200°C abgekühlt. Anschließend wird das Reaktionsgemisch über Leitung (12) einer Quenchkolonne (13) aufgegeben, in der eine Abkühlung auf 60° C am Kolonnenkopf erfolgt. Die in der Quenchkolonne (13) anfallende Gasphase wird über Leitung (14) einem Kompressor (15) zugeführt, auf einen Druck von 27 bar (abs) verdichtet und auf eine Temperatur von 60° C abgekühlt. Die im Kompressor (15) gebildeten Kohlenwasserstoffe enthaltenden Gas- und Flüssigkeitsphase werden über Leitung (16) bzw. (17) einer Destillationskolonne (18) zugeleitet, über deren Kopf über Leitung (19) die eine

Temperatur von 20°C aufweisende Propylen, Ethylen und andere leichte Kohlenwasserstoffe enthaltende Gasphase und aus deren Sumpf eine im wesentlichen C₄+ Olefine enthaltende Flüssigkeitsphase über Leitung (20) abgeführt werden. Das Kopfprodukt besitzt einen Propylengehalt von ca. 75 Gew.-%. Das Sumpfprodukt wird einer Destillationskolonne (21) zugeführt und in dieser in eine C₄ bis C₆ Olefine enthaltende Gasphase mit einer Temperatur von 50°C und eine C₇+ Olefine enthaltende Flüssigkeitsphase getrennt. Die über Leitung (22) aus der Destillationskolonne (21) austretende Gasphase wird ca. 65% über Leitung (26) einem Überhitzer (27) aufgegeben und danach über Leitung (28) in den Wärmetauscher (4) für die Überhitzung des dampfförmigen Einsatzstroms zurückgeführt, während der Rest der Gasphase über Leitung (29) ausgeschleust wird. Die die Destillationskolonne (21) verlassende Flüssigkeitsphase wird über Leitung (23) aus dem Verfahrensprozeß ausgeleitet. Der aus der Quenchkolonne (13) austretende Wasserstrom wird über Leitung (24) in den Verdampfer (25) geleitet und der darin gebildete nach Überhitzung eine Temperatur von 700°C aufweisende Wasserdampf dem eine Temperatur von 350°C besitzenden dampfförmigen Kohlenwasserstoffe enthaltenden Einsatzstrom über Leitung (5) vor dem Einströmen des Einsatzstroms in die Mischvorrichtung (7) zugeetzt. Das im Kompressor (15) gebildete Wasser wird über Leitung (30) in den aus der Quenchkolonne (13) durch Leitung (24) abgeführten Wasserstrom eingespeist.

Patentansprüche

1. Verfahren zur Herstellung von Propylen aus einem C₄ bis C₈ Olefine enthaltenden flüssigen Einsatzstrom, der bei 25 bis 200°C verdampft und auf 350 bis 400°C überhitzt wird, der gebildete die Olefine enthaltende Dampf mit heißem Wasserdampf gemischt wird, das Olefine-Dampf-Gemisch bei Eintrittstemperaturen von 450 bis 550° C und Drücken von 0.5 bis 3.0 bar (abs) an einem formselektiven Zeolith-Festbettkatalysator (9) vom Pentasiltyp umgesetzt wird, das dabei gebildete Reaktionsgemisch auf 100 bis 200° C abgekühlt und durch eine anschließende weitere Abkühlung auf Temperaturen von 40 bis < 100°C eine Teilkondensation unter Bildung einer im wesentlichen Ethylen, Propylen, C₄ bis C₈ Olefine und weitere Kohlenwasserstoffe enthaltenden Gasphase und eine im wesentlichen aus Wasser bestehende in den Einsatzstrom zurückgeführte Flüssigkeitsphase durchgeführt wird, dadurch gekennzeichnet, dass die bei der mittels einer Quenchstufe (13) durchgeführten Teilkondensation gebildete Ethylen, Propylen, C₄ bis C₈ Olefine und weitere Kohlenwasserstoffe enthaltende Gasphase auf einen Druck von 20 bis 30 bar (abs) verdichtet wird, die aus der Verdichterstufe (15) austretende Gas- und Flüssigkeitsphase in eine im wesentlichen Propylen, Ethylen und andere leichte Kohlenwasserstoffe enthaltende Gasphase und eine C₄₊ Olefine enthaltende Flüssigkeitsphase getrennt werden und die Flüssigkeitsphase in eine C₄ bis C₆ Olefine enthaltende Fraktion und eine C₇₊ Olefine enthaltende Fraktion getrennt wird.
2. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass der in der Quenchstufe (13) als Kondensat anfallende Wasserstrom wieder verdampft, dann auf eine Temperatur von 600 bis 800°C aufgeheizt und in den dampfförmigen Kohlenwasserstoffe enthaltenden Einsatzstrom zurückgeführt wird.
3. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 und 2, dadurch gekennzeichnet, dass der überwiegende Teil der erzeugten C₄ bis C₆ Olefine in den dampfförmigen Kohlenwasserstoffe enthaltenden Einsatzstrom zurückgeführt wird.
4. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 3, dadurch gekennzeichnet, dass das in der Verdichterstufe (15) anfallende Wasser verdampft, dann auf eine Temperatur von 600 bis 800°C aufgeheizt und in den dampfförmigen Kohlenwasserstoffe enthaltenden Einsatzstrom zurückgeführt wird.



Figur 1

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No

PCT/EP 03/05903

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

IPC 7 C07C4/06 C07C11/00 C07C11/02 C07C1/06

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

IPC 7 C07C

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the International search (name of data base and, where practical, search terms used)

EPO-Internal, WPI Data, PAJ

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category *	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	US 5 981 819 A (MOELLER FRIEDRICH-WILHELM ET AL) 9 November 1999 (1999-11-09) the whole document	1-4
A	DE 199 33 063 A (METALLGESELLSCHAFT AG) 18 January 2001 (2001-01-18) the whole document	1-4
A	EP 0 421 701 A (ARCO CHEM TECH) 10 April 1991 (1991-04-10) *Zusammenfassung; Ansprüche und Beispiele*	1-4
A	EP 0 511 013 A (ARCO CHEM TECH) 28 October 1992 (1992-10-28) *Zusammenfassung; Ansprüche und Beispiele*	1-4

☐ Further documents are listed in the continuation of box C.

☒ Patent family members are listed in annex.

* Special categories of cited documents :

A document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance

E earlier document but published on or after the international filing date

L document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)

O document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means

P document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

T later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

X document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

Y document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art.

Z document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search

16 September 2003

Date of mailing of the international search report

10/10/2003

Name and mailing address of the ISA

European Patent Office, P.B. 5818 Patentlaan 2
NL - 2280 HV Rijswijk
Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,
Fax: (+31-70) 340-3016

Authorized officer

Lorenzo Varela, M.J.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International Application No

PCT/EP 03/05903

Patent document cited in search report		Publication date	Patent family member(s)	Publication date
US 5981819	A	09-11-1999	DE 19648795 A1	28-05-1998
			AT 192130 T	15-05-2000
			DE 59701506 D1	31-05-2000
			EP 0844224 A1	27-05-1998
			ES 2147959 T3	01-10-2000
			GR 3033537 T3	29-09-2000
			PT 844224 T	31-08-2000
DE 19933063	A	18-01-2001	DE 19933063 A1	18-01-2001
			AT 243733 T	15-07-2003
			DE 50002668 D1	31-07-2003
			WO 0105909 A1	25-01-2001
			EP 1204720 A1	15-05-2002
			NO 20020187 A	22-02-2002
EP 0421701	A	10-04-1991	US 5026936 A	25-06-1991
			CA 2024902 A1	03-04-1991
			DE 69026671 D1	30-05-1996
			DE 69026671 T2	19-09-1996
			EP 0421701 A1	10-04-1991
			ES 2087131 T3	16-07-1996
			JP 2920841 B2	19-07-1999
			JP 3167137 A	19-07-1991
EP 0511013	A	28-10-1992	KR 164220 B1	20-03-1999
			US 5171921 A	15-12-1992
			DE 69214499 D1	21-11-1996
			DE 69214499 T2	20-02-1997
			EP 0511013 A2	28-10-1992
			ES 2092635 T3	01-12-1996
			JP 3057398 B2	26-06-2000
			JP 6073382 A	15-03-1994
			KR 237508 B1	15-01-2000

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Internationales Aktenzeichen

PCT/EP 03/05903

A. KLASSIFIZIERUNG DES ANMELDUNGSGEGENSTANDES

IPK 7 C07C4/06 C07C11/00 C07C11/02 C07C1/06

Nach der internationalen Patentklassifikation (IPK) oder nach der nationalen Klassifikation und der IPK

B. RECHERCHIERTE GEBIETE

Recherchierte Mindestprüfstoff (Klassifikationssystem und Klassifikationssymbole)

IPK 7 C07C

Recherchierte aber nicht zum Mindestprüfstoff gehörende Veröffentlichungen, soweit diese unter die recherchierten Gebiete fallen

Während der internationalen Recherche konsultierte elektronische Datenbank (Name der Datenbank und evtl. verwendete Suchbegriffe)

EPO-Internal, WPI Data, PAJ

C. ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
A	US 5 981 819 A (MOELLER FRIEDRICH-WILHELM ET AL) 9. November 1999 (1999-11-09) das ganze Dokument	1-4
A	DE 199 33 063 A (METALLGESELLSCHAFT AG) 18. Januar 2001 (2001-01-18) das ganze Dokument	1-4
A	EP 0 421 701 A (ARCO CHEM TECH) 10. April 1991 (1991-04-10) *Zusammenfassung; Ansprüche und Beispiele*	1-4
A	EP 0 511 013 A (ARCO CHEM TECH) 28. Oktober 1992 (1992-10-28) *Zusammenfassung; Ansprüche und Beispiele*	1-4

☐ Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu entnehmen

☒ Siehe Anhang Patentfamilie

* Besondere Kategorien von angegebenen Veröffentlichungen :

A Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist

E Älteres Dokument, das jedoch erst am oder nach dem internationalen Anmeldedatum veröffentlicht worden ist

L Veröffentlichung, die geeignet ist, einen Prioritätsanspruch zweifelhaft erscheinen zu lassen, oder durch die das Veröffentlichungsdatum einer anderen im Recherchenbericht genannten Veröffentlichung belegt werden soll oder die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie ausgeführt)

O Veröffentlichung, die sich auf eine mündliche Offenbarung, eine Benutzung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht

P Veröffentlichung, die vor dem internationalen Anmeldedatum, aber nach dem beanspruchten Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist

T Spätere Veröffentlichung, die nach dem internationalen Anmeldedatum oder dem Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist und mit der Anmeldung nicht kollidiert, sondern nur zum Verständnis des der Erfindung zugrundeliegenden Prinzips oder der ihr zugrundeliegenden Theorie angegeben ist

X Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann allein aufgrund dieser Veröffentlichung nicht als neu oder auf erfinderscher Tätigkeit beruhend betrachtet werden

Y Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann nicht als auf erfinderscher Tätigkeit beruhend betrachtet werden, wenn die Veröffentlichung mit einer oder mehreren anderen Veröffentlichungen dieser Kategorie in Verbindung gebracht wird und diese Verbindung für einen Fachmann naheliegend ist

Z Veröffentlichung, die Mitglied derselben Patentfamilie ist

Datum des Abschlusses der internationalen Recherche

16. September 2003

Absendedatum des internationalen Recherchenberichts

10/10/2003

Name und Postanschrift der internationalen Recherchenbehörde

Europäisches Patentamt, P.B. 5818 Patentlaan 2
NL - 2280 HV Rijswijk
Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,
Fax: (+31-70) 340-3016

Bevollmächtigter Bediensteter

Lorenzo Varela, M.J.

INTERNATIONAL RECHERCHENBERICHT

Angaben zu Veröffentlichungen, die zur selben Patentfamilie gehören

Internationales Aktenzeichen

PCT/EP 03/05903

Im Recherchenbericht angeführtes Patentdokument	Datum der Veröffentlichung	Mitglied(er) der Patentfamilie	Datum der Veröffentlichung
US 5981819 A	09-11-1999	DE 19648795 A1	28-05-1998
		AT 192130 T	15-05-2000
		DE 59701506 D1	31-05-2000
		EP 0844224 A1	27-05-1998
		ES 2147959 T3	01-10-2000
		GR 3033537 T3	29-09-2000
		PT 844224 T	31-08-2000
DE 19933063 A	18-01-2001	DE 19933063 A1	18-01-2001
		AT 243733 T	15-07-2003
		DE 50002668 D1	31-07-2003
		WO 0105909 A1	25-01-2001
		EP 1204720 A1	15-05-2002
		NO 20020187 A	22-02-2002
EP 0421701 A	10-04-1991	US 5026936 A	25-06-1991
		CA 2024902 A1	03-04-1991
		DE 69026671 D1	30-05-1996
		DE 69026671 T2	19-09-1996
		EP 0421701 A1	10-04-1991
		ES 2087131 T3	16-07-1996
		JP 2920841 B2	19-07-1999
		JP 3167137 A	19-07-1991
		KR 164220 B1	20-03-1999
EP 0511013 A	28-10-1992	US 5171921 A	15-12-1992
		DE 69214499 D1	21-11-1996
		DE 69214499 T2	20-02-1997
		EP 0511013 A2	28-10-1992
		ES 2092635 T3	01-12-1996
		JP 3057398 B2	26-06-2000
		JP 6073382 A	15-03-1994
		KR 237508 B1	15-01-2000

**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning
Operations and is not part of the Official Record**

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- ☐ BLACK BORDERS
- ☐ IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- ☐ FADED TEXT OR DRAWING
- ☒ BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING
- ☐ SKEWED/SLANTED IMAGES
- ☐ COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS
- ☐ GRAY SCALE DOCUMENTS
- ☐ LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT
- ☐ REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY
- ☐ OTHER: _____

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.